

University of Groningen

Mössbauer spectra and magnetic properties of iron compounds

van der Woude, Folkert

IMPORTANT NOTE: You are advised to consult the publisher's version (publisher's PDF) if you wish to cite from it. Please check the document version below.

Document Version

Publisher's PDF, also known as Version of record

Publication date:

1966

[Link to publication in University of Groningen/UMCG research database](#)

Citation for published version (APA):

van der Woude, F. (1966). *Mössbauer spectra and magnetic properties of iron compounds*. s.n.

Copyright

Other than for strictly personal use, it is not permitted to download or to forward/distribute the text or part of it without the consent of the author(s) and/or copyright holder(s), unless the work is under an open content license (like Creative Commons).

The publication may also be distributed here under the terms of Article 25fa of the Dutch Copyright Act, indicated by the "Taverne" license. More information can be found on the University of Groningen website: <https://www.rug.nl/library/open-access/self-archiving-pure/taverne-amendment>.

Take-down policy

If you believe that this document breaches copyright please contact us providing details, and we will remove access to the work immediately and investigate your claim.

Downloaded from the University of Groningen/UMCG research database (Pure): <http://www.rug.nl/research/portal>. For technical reasons the number of authors shown on this cover page is limited to 10 maximum.

SAMENVATTING

Omstreeks 1958 ontdekte Mössbauer, dat de emissie of absorptie van gamma-straling door atoomkernen, ingebouwd in een vaste stof, kan plaats vinden zonder uitwisseling van terugstootenergie. De fractie van de emissie- en absorptie processen, die "terugstootvrij" verloopt, wordt gegeven door de Debije-Waller factor f ; deze hangt onder meer samen met de starheid van het rooster, d.w.z. met de Debije temperatuur θ_D . In hoofdstuk 1 wordt een korte bespreking gegeven van het door Mössbauer ontdekte effect. Wisselwerking tussen de kernlading en de s-electronendichtheid t.p.v. de kern, tussen het magnetisch moment van de kern en het effectieve magnetische veld t.p.v. de kern, en tussen het quadrupoolmoment van de kern en de elektrische veldgradient t.p.v. de kern, brengt splitsing of verschuiving van de grondtoestand en de eerste aangeslagen toestand van de kernniveau's teweeg. Uit Mössbauerspectra kan informatie worden verkregen omtrent de eigenschappen van de kern en van de omgeving. Dit laatste maakt het Mössbauer effect aantrekkelijk voor de studie van de vaste stof. Hoewel het Mössbauer effect bij een groot aantal kernen is waargenomen, wordt in dit proefschrift alleen van Fe^{57} gebruik gemaakt.

Onder invloed van een magnetisch veld worden de kernniveau's gesplitst, zodat meerdere overgangen mogelijk zijn tussen grondtoestand en eerste aangeslagen toestand; in het geval van Fe^{57} zijn dit er zes. In hoofdstuk 2 wordt nagegaan, wat de gevolgen voor het Mössbauer spectrum zijn, als het magnetische veld fluctueert. De grondslagen van deze beschouwing zijn overgenomen van de behandeling van "motional narrowing" uit de kernspinresonantie. De kern, die gammastraling uitzendt, wordt opgevat als een oscillator; het fluctuerende magnetische veld veroorzaakt frequentie modulatie. Aangenomen wordt, dat het proces voldoet aan de definitie van een Markoff proces. Een uitdrukking

voor de frequentie distributie, die het Mössbauer spectrum beschrijft als functie van de splitsing tussen kernniveau's (een maat voor de Larmorprecessiefrequentie van de kern), de frequentie waarmee het veld fluctueert, en de mate van polarisatie van het elektronen spinsysteem, wordt afgeleid. Het model wordt toegepast bij de analyse van metingen aan $\text{FeNH}_4(\text{SO}_4)_2 \cdot 12\text{H}_2\text{O}$ in hoge magneetvelden en bij lage temperatuur, uitgevoerd door Obenshain en medewerkers. Uit de resultaten van de analyse blijkt, dat het model zeer bruikbaar is.

In hoofdstuk 3 worden de experimenten van Obenshain e.a. kwalitatief besproken. De meest opvallende punten, nl. een afstand tussen de buitenste pieken in het spectrum, die de magnetisatie niet volgt, en zeer brede lijnen, blijken eenvoudig uit het in hoofdstuk 2 besproken model te volgen. De voorwaarde, waaronder genoemde verschijnselen kunnen worden waargenomen is, dat de Larmorprecessiefrequentie van de kern en de fluctuatiefrequentie van het magnetische veld van dezelfde orde van grootte zijn.

In hoofdstuk 4 wordt het verband nagegaan tussen de vorm van Mössbauer spectra en magnetische eigenschappen. Hierbij staat centraal de vraag: Is het uit Mössbauer spectra af te leiden inwendige magnetische veld evenredig met de spontane magnetisatie, eventueel de subroostermagnetisatie? Dit hangt weer af van de verhouding van de Larmor precessiefrequentie en de fluctuatiefrequentie van het effectieve magnetische veld. Zowel het Weiss moleculaire veldmodel als de spingolvenbenadering voor magnetisatie worden als uitgangspunt voor de beschouwing gekozen. Ook het voorkomen van magnetische splitsing in paramagnetische materialen wordt behandeld.

In hoofdstuk 5 wordt de constructie van een oven en kryostaat beschreven, benevens de bijbehorende apparatuur voor het meten en regelen van de temperatuur. De in de hoofdstukken 6 en 7 besproken experimenten zijn met deze apparatuur uitgevoerd. De temperatuur van de absorber, geplaatst in de oven of kryostaat, kan verscheidene uren tot binnen 0.1°C constant worden gehouden. Het beschikbare temperatuurtraject ligt tussen 85° en 1200°K .

In hoofdstuk 6 worden metingen aan het antiferromagnetische $\alpha\text{-FeOOH}$ besproken. Uit de metingen wordt een Néel temperatuur T_N van $393,3^\circ\text{K}$ en een effectief magnetisch veld, geëxtrapoleerd naar 0°K , van 510 kOe afgeleid. De veldgradienten t. p. v. de ijzerkernen langs de kristallografische x -, y -, en z -as zijn berekend op grond van het puntladingmodel. Uit deze waarden, gecombineerd met de gemeten quadrupoolsplitsing, is het quadrupoolmoment Q van de Fe^{57} -kern, berekend: $Q = 0.28 \times 10^{-24} \text{ cm}^2$. Uit de grootte en richting van de

verschuiving van de Zeemanniveau's door quadrupoolwisselwerking wordt geconcludeerd dat de richting van de spins van de ijzerionen evenwijdig is aan de z -as. Verder is speciale aandacht besteed aan de temperatuurafhankelijkheid van het effectieve magnetische veld, en aan de vorm van de spectra in de buurt van de Néel temperatuur. Uit de literatuur blijkt, dat de experimentele gegevens van α -FeOOH, bepaald uit Mössbauer spectra weinig overeenstemming vertonen. Hiervoor wordt een verklaring gegeven.

De resultaten van de metingen aan het antiferromagnetische α -Fe₂O₃ staan vermeld in hoofdstuk 7. α -Fe₂O₃ vertoont interessante eigenschappen, nl. bij 260°K draait de kwantisatie-richting van de spins van de ijzerionen over 90° en tussen 260°K en de Néel temperatuur van 956°K vertoont het zwak ferromagnetisme. De verandering van de inwendige velden rond de spinovergangstemperatuur $T_t = 260^\circ\text{K}$ is speciaal bestudeerd. Het effectieve magnetische veld H_{eff} neemt abrupt af met 8 kOe bij verwarming door de overgangstemperatuur. Bovendien blijkt de H_{eff} versus T kromme hysteresis te vertonen. Een verklaring voor de discontinuïteit in H_{eff} kan worden gegeven, door behalve het contactveld, ook de bijdragen van het baanmoment en het dipoolveld, veroorzaakt door de asymmetrische ladingsverdeling van de 3d-electronen van het Fe³⁺-ion, tot H_{eff} te beschouwen. Ook de temperatuurafhankelijkheid van H_{eff} is bepaald; deze is, evenals bij α -FeOOH, niet te beschrijven met een Brillouin curve voor $S = 5/2$.

4124
1966